

H18/A09 高次スピン機能ホイスラー合金の電子状態 (1節 共同プロジェクト研究の理念と概要, 第4章 共同プロジェクト研究)

雑誌名	東北大学電気通信研究所研究活動報告
巻	13
ページ	183-185
発行年	2007-08
URL	http://hdl.handle.net/10097/40656

高次スピン機能ホイスラー合金の電子状態

[1] 組織

代表者：白井 正文

(東北大学 電気通信研究所)

対応者： 同上

分担者：

鹿又 武 (東北学院大学 工学部)

山本 眞史 (北海道大学情報科学研究科)

高橋有紀子 (物質・材料研究機構)

小田 竜樹 (金沢大学 自然科学研究科)

木村 昭夫 (広島大学 理学研究科)

宮本 幸治 (広島大学 理学研究科)

研究費：物件費 27万8千円，旅費 3万7千円

[2] 研究経過

近年盛んに研究されているスピントロニクス分野において、高いスピン偏極率を有する強磁性材料はトンネル磁気抵抗素子の高性能化などに不可欠な材料である。また、形状記憶効果を示す合金はアクチュエータなどに広く利用されている。本プロジェクトでは、こうした有用な機能を発現するホイスラー合金を対象として、その電子状態と機能の相関を理論と実験の共同研究により解明することを目的として研究を行った。さらに、研究の過程で得られた知見を蓄積することにより、新規な高次スピン機能を発現するホイスラー合金の創製を目指した。

以下、研究活動状況の概要を記す。

平成18年8月15日～18日に仙台国際センターで開催された通研国際シンポジウム「第4回半導体におけるスピン関連現象の物理と応用」ならびに同時開催の「第19回磁性薄膜と表面に関する国際会議」に参加するために仙台を訪れた木村昭夫・宮本幸治（広島大）両氏と、スピン分解光電子分光やX線吸収磁気円二色性測定によるホイスラー合金の電子状態および磁気特性の実験結果について打合せを行った。

平成18年8月29日に東北大学青葉山キャンパスにおいて開催されたワークショップ「磁性形状記憶とメタ磁性相転移」において、木村昭夫氏は強磁性ホイスラー合金の電子状態のX線光電子分光について、長尾和多加氏（東北大）はホイスラー合金と半導体のヘテロ接合界面の電子状態について講演を

行った。その後、ホイスラー合金研究の第一人者である英国ラフバラ大学のジーバック教授を交えて種々議論を行った。

平成18年9月28日～29日に東北大学電気通信研究所において開催された共同プロジェクト研究会「スピニエレクトロニクスの新展開」において、山本眞史氏（北大）はホイスラー合金電極を用いたトンネル磁気抵抗素子について、高橋有紀子氏（物材機構）はホイスラー合金のスピン分極率の測定結果について講演を行った。その後、スピン分極した電流源としてのホイスラー合金の有用性について、理論・実験の両面からの検討を行い、理論計算によって予測されたホイスラー合金の高スピン分極率が必ずしも実験的に確認されていない現状を確認した。また、今後の共同研究の推進方法に関して打合せを行った。

平成18年12月7日に東北大学電気通信研究所において「高次スピン機能材料の設計と創製」に関する研究会を開催した。木村昭夫氏はスピントロニクス材料の光電子分光について、小田竜樹氏（金沢大）は磁性ナノクラスターの理論設計について、三浦良雄氏（東北大）はホイスラー合金の電子状態とスピン依存電気伝導の理論計算について講演を行った。この機会に東北大学ならびに東北学院大学の若手研究者にも講演していただき、ホイスラー合金だけでなく形状記憶効果や熱電効果など幅広いスピン機能を発現する材料の実験研究の現状に関する意見交換を行った。

平成19年2月15日～16日に東北大学電気通信研究所で開催された「第2回スピントロニクスに関する通研国際ワークショップ」において、山本眞史・高橋有紀子両氏とホイスラー合金のスピン分極率とトンネル磁気抵抗素子への応用について討論を行った。トンネル磁気抵抗素子の性能は着実に向上しているが、その起源が電極材料のホイスラー合金の特性によるものか、障壁材料の酸化マグネシウムによるものかについて議論を行った。

以上の研究会等での議論を踏まえて、平成19年2月より、高スピン分極率と形状記憶効果を兼備えた高次スピン機能を発現する新たなホイスラー合金の開発に向けて、理論計算ならびに試料作製の準備を開始した。

[3] 成果

(3-1) 研究成果

本年度は、以下に示す研究成果を得た。

ホイスラー合金電極と酸化マグネシウム MgO 障壁層からなるトンネル接合におけるスピン依存電気伝導を理論計算した。その結果、 Co_2MnSi 、 Co_2FeSi などの価電子数の比較的多いホイスラー合金を電極としたトンネル接合の場合、平行磁化配置において Δ_1 対称性をもつバンド電子が MgO 障壁層を優先的に透過する機構によって大きなトンネル透過率が期待できることを見出した。一方、 Co_2CrAl などの価電子数の少ないホイスラー合金を電極とした場合、 Δ_1 バンドがフェルミ準位付近に存在しないために、低バイアス電圧下では Δ_1 バンド電子がトンネル伝導に寄与できず、桁違いに小さなトンネル透過率しか得られないことを明らかにした。(白井正文)

ホイスラー合金薄膜を電極とし、MgO をトンネル障壁に用いたエピタキシャル磁気トンネル接合を製作して、それらが比較的高いトンネル磁気抵抗を示すことを実証した。得られたトンネル磁気抵抗比は、 Co_2MnSi を下部電極とした場合（上部電極は $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ ）において室温で 90%（低温で 192%）、 $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ を下部電極とした場合には室温で 109%（低温で 317%）に達する。さらに、これらホイスラー合金を上部・下部両電極に用いた磁気トンネル接合の製作にも成功している。また、半導体 GaAs 基板上に MgO 層を介してホイスラー合金薄膜を成長し、その結晶構造（特にエピタキシャル方位関係）と磁気特性を明らかにした。(山本眞史)

ホイスラー合金のスピン分極率と合金組成や規則度との関連を明らかにするために、点接触アンドレーフ反射測定を用いたスピン分極率測定を行った。その結果、 Co_2FeSi のスピン分極率として約 50% という値が得られた。この値は理論計算値（100%）に比べて著しく低い、同じホイスラー合金を電極とする磁気トンネル接合が示すトンネル磁気抵抗比の測定値からジュリエールの式を用いて導き出されたスピン分極率とよく対応している。スピン分極率の実験値と理論値が違っている理由として、ホイスラー合金の原子配列が完全には規則化していないことが考えられる。また、ホイスラー合金の表面・界面でのスピン分極率の低下が原因であることも考えられる。今後、ホイスラー合金のスピン分極率と合金組成・規則度・微細構造との関連を明らかにするために、ホイスラー合金/絶縁体/超伝導体接合を用いたアンドレーフ反射測定と微細構造観察を同時に行うことを計画している。(高橋有紀子)

強磁性転移温度以下でマルテンサイト変態を示すホイスラー合金 $\text{Ni}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Sn}_x$ の強磁場下における磁性と電気伝導を調べた。スズ組成 16% のホイスラー合金において磁気相転移に伴う電気抵抗の不連続変化（約 46%）を観測した。さらに、強磁場により誘起された磁気相転移に伴う巨大な磁気抵抗効果（50%）を見出した。この実験結果は、磁気相転移に伴ってホイスラー合金の磁気構造や電子状態が著しく変化していることを示唆している。今後、理論・実験両面から研究を継続してミクロな機構を明らかにする必要である。(鹿又 武)

ホイスラー合金 $\text{Fe}_{3-x}\text{V}_x\text{Si}$ の電子状態の合金組成に対する依存性を光電子分光により明らかにした。バナジウム組成の増加に伴い、化学ポテンシャルがシフトすることを反映して、Si 2p 軌道準位が高束縛エネルギー側にシフトしていることを見出した。フェルミ準位の低エネルギー側 1 eV および 1.5~1.8 eV 付近に見られる光電子スペクトルの構造は Fe 3d 軌道成分によることを、スペクトルの入射光エネルギー依存性より明らかにした。フェルミ準位付近の電子状態は V 3d 軌道および Fe 3d 軌道からなり、高バナジウム組成の試料ではフェルミ準位におけるスペクトル強度が低下しており、擬ギャップが形成されている。(木村昭夫・宮本幸治・鹿又 武)

スピン軌道相互作用を考慮した相対論的擬ポテンシャルを開発し、Pt (111) 表面上に吸着した Fe 原子が形成するナノ構造における磁気構造と磁気異方性を理論的に明らかにした。Pt (111) 表面を Fe 原子が完全に覆った Fe 単原子層の場合、磁気容易軸は面内の最近接 Fe 原子方向である。一方、Pt (111) 表面上の Fe 原子鎖構造では、磁気容易軸は原子鎖方向となる。磁性を担っている Fe 原子の局所電子状態は、近接する Fe および Pt 原子との軌道混成効果により敏感に変化するので、Fe 原子周りの局所構造を正確に考慮した計算が必要である。(小田竜樹)

(3-2) 波及効果と発展性など

本プロジェクトにより、研究分担者を中心とした学外研究者との交流が飛躍的に活性化し、文部科学省科学研究費補助金特定領域研究「スピン流の創出と制御」の発足に結びついた。また、本プロジェクトで明らかになった強磁性ホイスラー合金電極を用いた磁気トンネル接合におけるスピン依存電気伝導に関する研究成果は、次世代トンネル磁気抵抗素子の開発や「スピン流」という新しい概念に基づく研究領域の進展に結びつき、今後の発展が期待されている。

[4] 成果資料

- (1) Y. Miura, H. Uchida, Y. Oba, K. Nagao, and M. Shirai, "Coherent tunneling conductance in magnetic tunnel junctions of half-metallic full Heusler alloys with MgO barriers," J. Phys.: Condens. Matter **19**, 365228 (2007).
- (2) T. Marukame, T. Ishikawa, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, "High tunnel magnetoresistance in fully epitaxial magnetic tunnel junctions with a full-Heusler alloy $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ thin film," Appl. Phys. Lett. **88**, 262503 (2006).
- (3) T. Ishikawa, T. Marukame, H. Kijima, K.-i. Matsuda, T. Uemura, M. Arita, and M. Yamamoto, "Spin-dependent tunneling characteristics of fully epitaxial magnetic tunneling junctions with a full-Heusler alloy Co_2MnSi thin film and a MgO tunnel barrier," Appl. Phys. Lett. **89**, 192505 (2006).
- (4) T. Marukame, T. Ishikawa, S. Hakamata, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, "Highly spin-polarized tunneling in fully epitaxial $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ / MgO / $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ magnetic tunnel junctions with exchange biasing," Appl. Phys. Lett. **90**, 012508 (2007).
- (5) T. Yano, T. Uemura, K.-i. Matsuda, and M. Yamamoto, "Effect of a MgO interlayer on the structural and magnetic properties of $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ thin films epitaxially grown on GaAs substrates," J. Appl. Phys. **101**, 063804 (2007).
- (6) S. V. Karthik, A. Rajanikanth, Y. K. Takahashi, T. Okhubo, and K. Hono, "Spin polarization of quaternary $\text{Co}_2\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Al}$ Heusler alloys," Appl. Phys. Lett. **89**, 052505 (2006).
- (7) Z. Gercsi, A. Rajanikanth, Y. K. Takahashi, K. Hono, M. Kikuchi, N. Tezuka, and K. Inomata, "Spin polarization of Co_2FeSi full-Heusler alloy and tunneling magnetoresistance of its magnetic tunneling junctions," Appl. Phys. Lett. **89**, 082512 (2006).
- (8) A. Rajanikanth, Y. K. Takahashi, and K. Hono, "Spin polarization of Co_2MnGe and Co_2MnSi thin films with A2 and L2₁ structures," J. Appl. Phys. **101**, 023901 (2007).
- (9) K. Koyama, H. Okada, K. Watanabe, T. Kanomata, R. Kainuma, W. Ito, K. Oikawa, and K. Ishida, "Observation of large magnetoresistance of magnetic Heusler alloy $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{36}\text{Sn}_{14}$ in high magnetic fields," Appl. Phys. Lett. **89**, 182510 (2006).
- (10) D. Kikuchi, T. Kanomata, Y. Yamaguchi, and H. Nishihara, "Magnetic properties of ferromagnetic shape memory alloys $\text{Ni}_{50+x}\text{Mn}_{12.5}\text{Fe}_{12.5}\text{Ga}_{25-x}$," J. Alloys Compd. **426**, 223 (2006).
- (11) P. J. Brown, A. P. Gandy, K. Ishida, R. Kainuma, T. Kanomata, H. Morito, K. U. Neumann, K. Oikawa, and K. R. A. Ziebeck, "Crystal structures and magnetization distributions in the field dependent ferromagnetic shape memory alloy $\text{Ni}_{54}\text{Fe}_{19}\text{Ga}_{27}$," J. Phys.: Condens. Matter **19**, 016201 (2007).
- (12) Y. T. Cui, A. Kimura, K. Miyamoto, K. Sakamoto, T. Xie, S. Qiao, M. Nakatake, K. Shimada, M. Taniguchi, S.-i. Fujimori, Y. Saitoh, K. Kobayashi, T. Kanomata, and O. Nashima, "Electronic structures of $\text{Fe}_{3-x}\text{V}_x\text{Si}$ probed by photoemission spectroscopy," Phys. Stat. Sol. (a) **203**, 2765 (2006).
- (13) A. Hosokawa, M. Tsujikawa, H. Shiroishi, and T. Oda, "Development of fully relativistic pseudopotentials and application to a thin magnetic film on the metal," J. Magn. Magn. Mater. **310**, 1637 (2007).
- (14) M. Tsujikawa, A. Hosokawa, and T. Oda, "Magnetic anisotropies of iron on the Pt (111) surface," J. Phys.: Condens. Matter **19**, 365208 (2007).